

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
24. Oktober 2002 (24.10.2002)

PCT

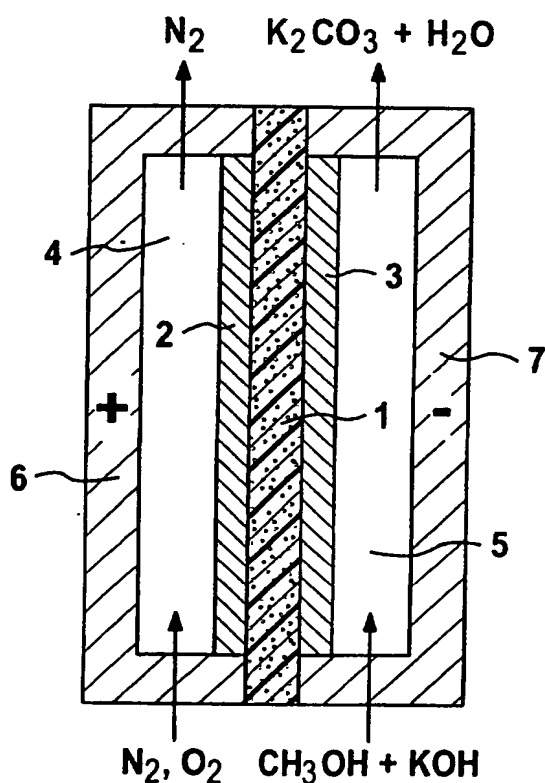
(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 02/084772 A2

- (51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: H01M 8/08 (72) Erfinder; und  
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE02/01426 (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): MUND, Konrad  
(DE/DE); Langenbrucker Weg 10, 91080 Uttenreuth (DE).  
(22) Internationales Anmeldedatum: 17. April 2002 (17.04.2002) (74) Gemeinsamer Vertreter: SIEMENS AKTIENGE-  
SELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, 80506 München  
(DE).  
(25) Einreichungssprache: Deutsch (81) Bestimmungsstaaten (national): BR, CN, JP, KR, US.  
(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch (84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT,  
BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC,  
NL, PT, SE, TR).  
(30) Angaben zur Priorität:  
101 18 744.0 17. April 2001 (17.04.2001) DE  
(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von  
US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];  
Wittelsbacherplatz 2, 80333 München (DE).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD FOR OPERATION OF A MICRO-FUEL CELL AND CORRESPONDING MICRO-FUEL CELL

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUM BETREIBEN EINER MIKROBRENNSTOFFZELLE UND ZUGEHÖRIGE MIKROBRENNSTOFFZELLE



(57) Abstract: Micro-fuel cells based on direct methanol fuel cells are known. According to the invention, a consumable material, comprising a mixture of a fluid fuel and an aqueous alkali liquor is supplied to the anode of the fuel cell, whilst the cathode is supplied with oxygen or air. A porous membrane (1) is arranged between the electrodes in the corresponding micro-fuel cell, whereby the porosity of the pores depends on the surface properties of the alkali liquor. Pore sizes are advantageously a diameter of  $< 1 \mu\text{m}$ . An exchangeable cartridge (20) is provided for the consumable material and the waste.

(57) Zusammenfassung: Mikrobrennstoffzellen auf der Basis von Direkt-Methanol-Brennstoffzellen sind bekannt. Gemäß der Erfindung wird der Anode der Brennstoffzelle ein Gemisch aus einem flüssigen Brennstoff und wässriger Alkalilauge als Verbrauchsmaterial zugeführt, während die Kathode mit Sauerstoff bzw. Luft versorgt wird. Bei der zugehörigen Mikrobrennstoffzelle ist eine poröse Membran (1) zwischen den Elektroden (2, 3) angeordnet, wobei die Porosität der Poren von den Oberflächeneigenschaften der Alkalilauge abhängt. Vorteilhafterweise sind Porengrößen mit einem Durchmesser  $< 1 \mu\text{m}$ . Für das Verbrauchsmaterial einschließlich des Abfalls ist eine austauschbare Kartusche (20) vorgesehen.

BEST AVAILABLE COPY

WO 02/084772 A2

**Erklärungen gemäß Regel 4.17:**

- hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii) für die folgenden Bestimmungsstaaten BR, CN, JP, KR, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR)
- Erfindererklärung (Regel 4.17 Ziffer iv) nur für US

**Veröffentlicht:**

- ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

## Beschreibung

Verfahren zum Betreiben einer Mikrobrennstoffzelle und zugehörige Mikrobrennstoffzelle

5

Die Erfindung bezieht sich auf ein Verfahren zum Betreiben einer Mikrobrennstoffzelle für die Stromversorgung portabler Geräte mit Umsetzung flüssiger Brennstoffe mittels einer geeigneten Membran und beidseitig angeordneter Anode und Kathode. Daneben bezieht sich die Erfindung auf eine zugehörige Mikrobrennstoffzelle.

Für die Energieversorgung tragbarer elektronischer Geräte werden Primär- und Sekundärzellen als Batterien eingesetzt. Dabei werden aufladbare Systeme wie Nickel-Metallhydrid- und Lithiumbatterien bevorzugt. Für die praktische Anwendung ist dabei wichtig, dass pro Volumen- oder Gewichtseinheit möglichst viel Energie speicherbar ist, und dass diese Energie bei Leistungsanforderung schnell zur Verfügung gestellt werden kann.

Speziell für Mobiltelefone sind die Anforderungen an die Energiespeicher besonders hoch. In diesem Fall wird eine Spannung von ca. 4 V und ein Energieinhalt von 2,5 Wxh (Watt-Stunden) gefordert. Kurzfristig muss eine Leistung von 2 W abgegeben werden können.

Letztere Anforderungen werden von den oben angegebenen Batterien erfüllt. Die Anforderungen sowohl hinsichtlich Energieinhalt als auch Leistung steigen aber weiter. Bei Verbesserung von Lithiumbatterien ist ein Energieinhalt jedoch von mehr als 300 Wxh/kg derzeit nicht zu erwarten. Bekanntermaßen könnte mit Mikrobrennstoffzellen das Problem des Energieinhalts und der Leistung gelöst werden.

35

Für Mikrobrennstoffzellen sind bisher zwei Lösungswege vorgeschlagen worden. Beim ersten Weg soll die Mikrobrennstoffzel-

le eine wasserstoffbetriebene PEM FC (Polymer Electrolyte  
Membrane Fuel Cell) sein. Dabei soll der Wasserstoff als Hyd-  
rid in einer Patrone gespeichert werden. Für das System ge-  
wichtsbestimmend ist also der Hydridspeicher. Berechnungen  
5 ergeben, dass verglichen mit einer Lithium-Polymer-Batterie  
eine 50%ige Steigerung des Energieinhaltes möglich ist.

Der zweite Lösungsweg betrifft eine DMFC (Direct Methanol  
Fuel Cell), d.h. eine Direktmethanol-Brennstoffzelle, auf der  
10 Basis der PEM-Brennstoffzelle, die also ebenfalls einen Memb-  
ranelektrolyten aufweist. Dabei wird ein Methanol-Wasser-  
Gemisch der Anode zugeführt, während die Kathode gleichzeitig  
mit Luft versorgt wird.

15 Nachteilig bei letzterem Energiewandler sind seine geringe  
Spannung von weniger als 0,5 V und der dadurch bedingte klei-  
ne Wirkungsgrad. Bei Raumtemperatur erreicht man somit nur  
eine Stromdichte von 10 mA/cm<sup>2</sup>. Höhere Stromdichten ergeben  
sich erst bei einer Erhöhung der Betriebstemperatur von mehr  
20 als 60°. Nachteilig ist weiterhin bei derartigen DMFC's, dass  
Methanol durch die Membran von der Anode zur Kathode diffun-  
dieren kann und ohne Stromausbeute an der Kathode oxidiert  
wird.

25 Die bekannten Methanol-Brennstoffzellen genügen also den An-  
forderungen hinsichtlich der Leistung, die an Mikrobrenn-  
stoffzellen für tragbare Geräte gestellt wird, nicht.

Aufgabe der Erfindung ist es, für Verbesserungen zu sorgen,  
30 und durch geeignete Verfahren bzw. Ausbildung der Brennstoff-  
zellen insbesondere die Leistungsausbeute zu verbessern.

Die Aufgabe ist erfindungsgemäß bei einem Verfahren der ein-  
gangs genannten Art durch die Maßnahmen des Patentanspruches  
35 1 gelöst. Eine zugehörige Mikrobrennstoffzelle ist im Patent-  
anspruch 4 angegeben. Vorteilhafte Weiterbildungen des Ver-  
fahrens und der zugehörigen Brennstoffzelle sind im Gegen-

stand der Unteransprüche.

Beim erfindungsgemäßen Verfahren wird ausgehend von einer Methanol-Brennstoffzelle ein Verfahren angegeben, bei dem die  
5 Anode mit einem Gemisch von Brennstoff und einem alkalischen Elektrolyten betrieben wird. Für dieses Verfahren können als Brennstoff Methanol, Ethanol, Kaliumformiat, Ethylenglykol oder Hydrazin verwendet werden. Als basischer Elektrolyt ist insbesondere Kalilauge, aber auch Natriumlauge oder Lithium-  
10 lauge möglich. Derartige Hydroxide der Alkalimetalle haben eine geeignete elektrische Leitfähigkeit.

Brennstoffzellen mit alkalischen Elektrolyten sind bereits vom Stand der Technik bekannt. In der Monographie „From  
15 Electrocatalysis to Fuel Cells“ (1972 ISBN 0-295-95178-8) werden hierzu im Einzelnen verschiedene Platinkatalysatoren auf ihre Eignung bei der Anodenreaktion untersucht. Die Anwendung bei portablen Brennstoffzellen, insbesondere Mikrobrennstoffzellen, ist dort weder angesprochen noch dadurch  
20 nahegelegt.

Demgegenüber wird bei der Erfindung ein alkalischer Elektrolyt gemeinsam mit einem flüssigen Brennstoff der Brennstoffzelle als Verbrauchsmaterial zugeführt. Insbesondere entsteht  
25 dabei als Reaktionsprodukt in der Brennstoffzelle Wasser und darin gelöstes Alkalicarbonat, das aus der Brennstoffzelle abgeführt wird.

Eine zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens geeignete Mikrobrennstoffzelle enthält eine poröse Membran zwischen den Elektroden, deren Poren mit Kalilauge gefüllt sind. Die Größe der Poren wird dabei durch die Oberflächeneigenschaften der verwendeten Kalilauge bestimmt. Vorteilhafterweise haben die Poren zur Aufnahme speziell von Kalilauge einen Durchmesser  $< 1 \mu\text{m}$ .  
35

Bei einer erfindungsgemäßen Mikrobrennstoffzelle wird also einerseits das Verbrauchsmaterial aus Brennstoff und Elektrolyt bevorratet und wird andererseits Wasser und darin gelöstes Carbonat aufgenommen. Hierfür können geeignete Kartuschen  
5 vorhanden sein, die intern zwei separate Teilbereiche aufweisen, deren Volumina gegebenenfalls veränderbar sind. Derartige Kartuschen sind im Prinzip bekannt und können bei entsprechender Form in geeigneter Weise als Austauschteil bereitgestellt werden.

10

Einzelheiten und Vorteile der Erfindung ergeben sich aus der Figurenbeschreibung eines Ausführungsbeispiels anhand der Zeichnung in Verbindung mit den Patentansprüchen. Es zeigen

15 Figur 1 das Prinzip einer mit Methanol und Kalilauge betriebenen Mikrobrennstoffzelle und  
Figur 2 eine Mikrobrennstoffzelle mit einer geeigneten Kartusche für Verbrauchsmaterial.

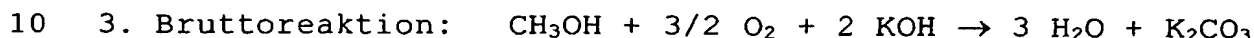
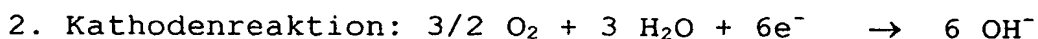
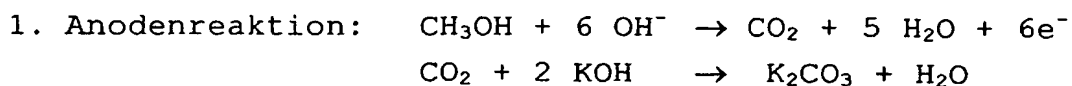
20 Anhand der Figur 1 wird das Prinzip einer Mikrobrennstoffzelle mit einem alkalischen Elektrolyten und einer Membran dargestellt. Die Membran ist mit 1 bezeichnet, wobei sich an ihren beiden Seiten Elektroden 2 und 3 befinden, welche die  
Anode einerseits und die Kathode andererseits definieren. An  
25 die Anode 2 schließt sich ein Anodenraum 4 an, in dem ein nicht im Einzelnen dargestellter Katalysator vorhanden ist.  
An die Kathode 3 schließt sich ein Kathodenraum 5 an, in dem ebenfalls ein nicht dargestellter Katalysator vorhanden ist.

30 Eine einzelne Brennstoffzelleneinheit wird von zwei polaren Platten 6 und 7 abgeschlossen, über die der Strom weggeführt wird. Beispielsweise 10 Elektrodeneinheiten bilden die Mikrobrennstoffzelle, wobei die Polplatten bipolare Platten sind.

35 Durch geeignete Herstellungstechnologien ist es möglich, eine einzelne Brennstoffzelleneinheit mit den Maßen von 35 x 30 mm und einer Dicke von 600 µm (0,6mm) zu realisieren. Dies be-

deutet, dass ein Stack von etwa zehn Zellen eine Gesamtdicke von unter 10 mm aufweist.

Die beschriebene Brennstoffzelle wird chemisch durch folgende Reaktionen bestimmt:



Für eine praxisgerechte Realisierung der angeführten Reaktionen ist die Ausbildung der Membran wesentlich. Im vorliegenden Fall wird keine Ionenaustauschermembran wie bei der DMFC verwendet, bei der  $\text{H}^+$ -Ionen den Stromtransport übernehmen. Vielmehr wird als Membran eine poröse Membran, deren Poren mit Alkalilauge gefüllt sind, verwendet. Die Porengröße hängt dabei im Einzelnen von den Eigenschaften des verwendeten Elektrolyten, insbesondere von der Oberflächenspannung, ab. Dabei wird davon ausgegangen, dass sich in den Poren kein Überdruck („bubble pressure“) aufbaut. Geeignet haben sich Porengrößen  $< 1 \mu\text{m}$  erwiesen.

Als flüssiger Brennstoff kommen vorzugsweise Methanol, aber gegebenenfalls auch Ethanol, Natriumformiat, Ethylenglykol oder Hydrazin in Frage. Geeignete Alkalilaugen sind vorzugsweise KOH, NaOH oder LiOH. Eine geeignete Mischung des Brennstoffes mit der Alkalilauge bildet das Verbrauchsmaterial für die Brennstoffzelle.

30

Ein wesentliches Merkmal des alkalischen Systems gemäß Figur 1 mit obigen Reaktionen ist, dass für die Kathode Silber als Katalysator für die Sauerstoffreduktion eingesetzt wird. Silber hat dabei speziell für Methanol den Vorteil, dass das Methanol trotz des positiven Potentials an diesem Katalysator nicht umgesetzt wird. Dadurch kommt es nicht zu einem unerwünschten Brennstoffverlust durch chemischen Kurzschluss.

35

Die Kathode mit Silber als Katalysator kann derart strukturiert sein, dass sie ohne Überdruck für die angebotene Luft und den Umsatz von Sauerstoff arbeiten kann. Durch die Wahl  
5 der geringen Porengrößen in der Membran wird gewährleistet, dass Luft nicht durch die Membran zur Anode gelangen kann.

In der Figur 2 ist ein für tragbare Geräte geeigneter Aufbau der Mikrobrennstoffzelle in vereinfachter Form dargestellt.  
10 Dabei bedeuten 10 das Stack aus den einzelnen Brennstoffzelleneinheiten, beispielsweise 10 Brennstoffzelleneinheiten. Auf das Stack 10 ist eine Kartusche 20 aufgesetzt, die einerseits das Verbrauchsmaterial enthält und andererseits das entstehende Wasser mit darin gelöstem Carbonat aufnehmen  
15 kann. Geeignet ist eine Kartusche 20, die eine interne flexible Wand 21 aufweist und damit zwei in ihrem Volumen veränderliche Räume 22 und 23 hat. Während bei einer neuen Kartusche 20 nahezu der gesamte Bereich durch das Verbrauchsmaterial mit Brennstoff und Alkalilauge ausgefüllt ist, sinkt mit  
20 dem Betrieb der Brennstoffzelle der Brennstoffvorrat im Raum 22, wobei im anderen Raum 23 der Anteil des Wassers mit Carbonat ansteigt. Bei Erschöpfung des Energievorrates wird die gesamte Kartusche 20 ausgetauscht.

25 Bei der beschriebenen Mikrobrennstoffzelle wird also für die spezifische Anwendung neben dem eigentlichen Brennstoff auch die Alkalilauge als Verbrauchsmaterial zur Verfügung gestellt. Dies ist für die Systeme mit Mikrobrennstoffzellen wirtschaftlich vertretbar. Durch die spezielle Verwendung von  
30 Silber als Katalysator wird vorteilhafterweise kein Brennstoffumsatz an der Kathode erreicht. Somit steigt der Faraday-Wirkungsgrad im Vergleich zur konventionellen DMFC mit Ionenaustauschermembran. Speziell die poröse Membran, welche die beiden Elektroden trennt, ist vorteilhaft, wobei die  
35 Kathode als Gasdiffusionselektrode arbeitet, während die Anode den flüssigen Brennstoff verarbeitet.



## Patentansprüche

1. Verfahren zum Betreiben einer Mikrobrennstoffzelle für die Stromversorgung portabler Geräte zur Umsetzung flüssiger Brennstoffe, mit einer geeigneten Membran und beidseitig der Membran angeordneter Anode und Kathode, wobei der Anode ein Gemisch aus einem flüssigen Brennstoff und wässriger Alkalilauge als Verbrauchsmaterial zugeführt wird, während die Kathode mit Sauerstoff bzw. Luft versorgt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , dass als Brennstoff Methanol, Ethanol, Kaliumformiat, Ethylenglykol oder Hydrazin gelöst in Alkalilauge angeboten wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder Anspruch 2, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , dass man das Verbrauchsmaterial bevorratet, mit dem Anodenraum eine Verbindung für den Antransport zur Anode herstellt und das Reaktionsprodukt aus Wasser und gelöstem Alkalikarbonat abtransportiert.
4. Zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 1 oder Anspruch 2 bzw. Anspruch 3 geeignete Mikrobrennstoffzelle, mit beidseitig einer Membran angeordneten Anode und Kathode und mit einem Elektrolyten, der einen Brennstoff als Verbrauchsmaterial enthält, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , dass als Membran eine poröse Membran (1) zwischen den Elektroden (2, 3) angeordnet ist, deren Poren mit Alkalilauge gefüllt sind.
5. Mikrobrennstoffzelle nach Anspruch 4, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , dass das Verbrauchsmaterial

ein Gemisch aus Methanol ( $\text{CH}_3\text{OH}$ ) und Kalilauge ( $\text{KOH}$ ) ist, welches in einem Behälter speicherbar ist.

5 6. Mikrobrennstoffzelle nach Anspruch 4 und/oder Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass die Poren einen Durchmesser  $< 1 \mu\text{m}$  haben.

10 7. Mikrobrennstoffzelle nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Kathode (3) Silber als Katalysator für die Sauerstoffreduktion enthält.

15 8. Mikrobrennstoffzelle nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Kathode (3) eine Gasdiffusionselektrode ist.

9. Mikrobrennstoffzelle nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass als Behälter für das Verbrauchsmaterial eine austauschbare Kartusche (20) vorhanden ist.

20 10. Mikrobrennstoffzelle nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass die Kartusche (20) zwei Teilbereiche (22, 23) aufweist.

25 11. Mikrobrennstoffzelle nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, dass die Teilbereiche (22, 23) durch eine flexible Wand (21) getrennt sind und veränderbare Volumina für Verbrauchsmaterial einerseits und das Reaktionsprodukte andererseits bilden.

1/1

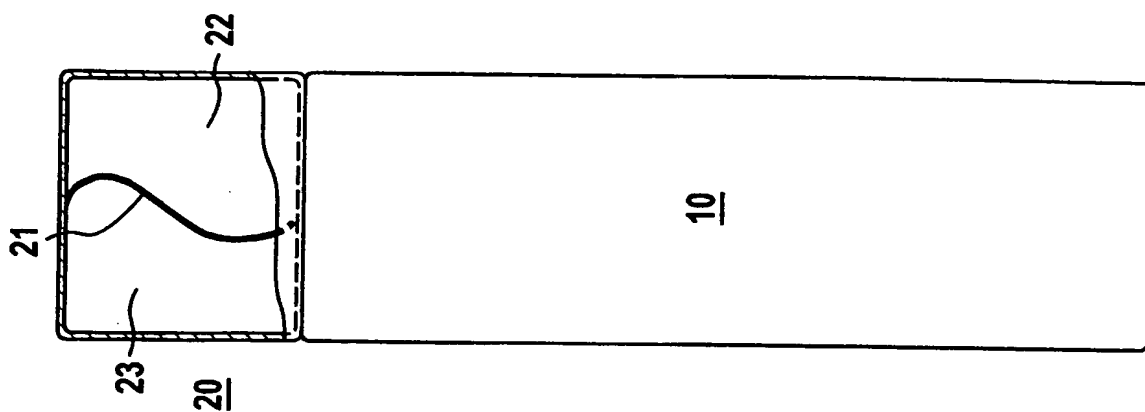


FIG 2

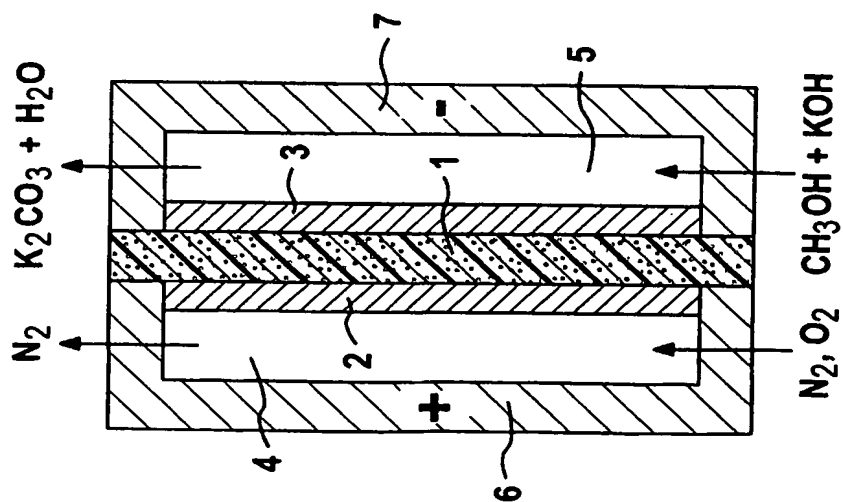


FIG 1

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
24. Oktober 2002 (24.10.2002)

PCT

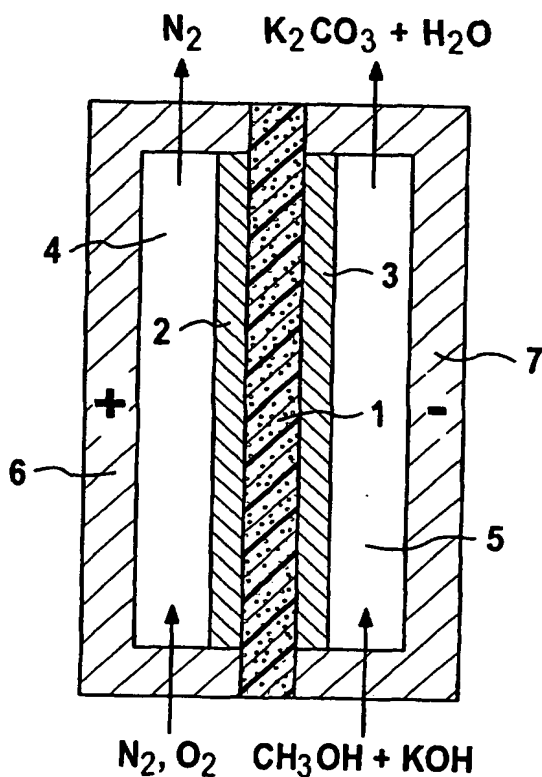
(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 02/084772 A3**

- (51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: **H01M 8/08**, 8/04, 8/22
- (21) Internationales Aktenzeichen: **PCT/DE02/01426**
- (22) Internationales Anmeldedatum:  
17. April 2002 (17.04.2002)
- (25) Einreichungssprache: **Deutsch**
- (26) Veröffentlichungssprache: **Deutsch**
- (30) Angaben zur Priorität:  
101 18 744.0 17. April 2001 (17.04.2001) **DE**
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]**; Wittelsbacherplatz 2, 80333 München (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **MUND, Konrad [DE/DE]**; Langenbrucker Weg 10, 91080 Uttenreuth (DE).
- (74) Gemeinsamer Vertreter: **SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT**; Postfach 22 16 34, 80506 München (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (national): **BR, CN, JP, KR, US.**
- (84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD FOR OPERATION OF A MICRO-FUEL CELL AND CORRESPONDING MICRO-FUEL CELL

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUM BETREIBEN EINER MIKROBRENNSTOFFZELLE UND ZUGEHORIGE MIKROBRENNSTOFFZELLE



(57) Abstract: Micro-fuel cells based on direct methanol fuel cells are known. According to the invention, a consumable material, comprising a mixture of a fluid fuel and an aqueous alkali liquor is supplied to the anode of the fuel cell, whilst the cathode is supplied with oxygen or air. A porous membrane (1) is arranged between the electrodes in the corresponding micro-fuel cell, whereby the porosity of the pores depends on the surface properties of the alkali liquor. Pore sizes are advantageously a diameter of < 1 µm. An exchangeable cartridge (20) is provided for the consumable material and the waste.

(57) Zusammenfassung: Mikrobrennstoffzellen auf der Basis von Direkt-Methanol-Brennstoffzellen sind bekannt. Gemäß der Erfindung wird der Anode der Brennstoffzelle ein Gemisch aus einem flüssigen Brennstoff und wässriger Alkalilauge als Verbrauchsmaterial zugeführt, während die Kathode mit Sauerstoff bzw. Luft versorgt wird. Bei der zugehörigen Mikrobrennstoffzelle ist eine poröse Membran (1) zwischen den Elektroden (2, 3) angeordnet, wobei die Porosität der Poren von den Oberflächeneigenschaften der Alkalilauge abhängt. Vorteilhafterweise sind Porengrößen mit einem Durchmesser < 1 µm. Für das Verbrauchsmaterial einschließlich des Abfalls ist eine austauschbare Kartusche (20) vorgesehen.

WO 02/084772 A3

**Erklärungen gemäß Regel 4.17:**

- hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii) für die folgenden Bestimmungsstaaten BR, CN, JP, KR, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR)
- Erfindererklärung (Regel 4.17 Ziffer iv) nur für US

**Veröffentlicht:**

- mit internationalem Recherchenbericht

- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

**(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen****Recherchenberichts:**

9. Oktober 2003

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/DE 02/01426

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 H01M8/08 H01M8/04 H01M8/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	GB 1 258 153 A (-) 22 December 1971 (1971-12-22)	1-5, 7, 8
Y	the whole document	6, 9, 10
X	US 3 843 410 A (SPAHRBIER D) 22 October 1974 (1974-10-22)	1-3
Y	column 1, line 68 - column 4, line 55; figure 1	10, 11
A	GB 1 195 633 A (-) 17 June 1970 (1970-06-17) examples 2-5	1-11
Y	US 3 364 071 A (KORDESCH KARL V) 16 January 1968 (1968-01-16) column 3, line 39 - line 52	6
	-/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents:

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*G\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

29 July 2003

Date of mailing of the international search report

06/08/2003

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Hintermaier, F

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 02/01426

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 3 391 028 A (VOSE RICHARD S) 2 July 1968 (1968-07-02) column 2, line 27 - line 48; table 3 ----	6
Y	US 3 525 643 A (RYHINER GUENTHER ET AL) 25 August 1970 (1970-08-25) column 6, line 66 - line 68 ----	6
Y	US 5 432 023 A (HONGU AKINORI ET AL) 11 July 1995 (1995-07-11) column 1, line 9 -column 2, line 46 column 8, line 32 -column 10, line 36 column 26, line 20 -column 29, line 22 ----	9-11
Y	CACCIOLA G ET AL: "Technology up date and new strategies on fuel cells" JOURNAL OF POWER SOURCES, ELSEVIER SEQUOIA S.A. LAUSANNE, CH, vol. 100, no. 1-2, 30 November 2001 (2001-11-30), pages 67-79, XP004322175 ISSN: 0378-7753 page 72 -page 73 -----	9-11



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 02/01426

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
GB 1258153	A	22-12-1971	DE 1771446 A1 FR 2009327 A5 JP 48027102 B	10-02-1972 30-01-1970 18-08-1973
US 3843410	A	22-10-1974	NONE	
GB 1195633	A	17-06-1970	AT 276517 B BE 710841 A CH 479956 A DE 1671970 A1 FR 1580857 A NL 6802164 A SE 332243 B US 3576732 A	25-11-1969 16-08-1968 15-10-1969 21-10-1971 12-09-1969 19-08-1968 01-02-1971 27-04-1971
US 3364071	A	16-01-1968	AT 259650 B BE 646168 A CH 425919 A FR 1395108 A GB 1056294 A NL 6403735 A	25-01-1968 31-07-1964 15-12-1966 09-04-1965 25-01-1967 12-10-1964
US 3391028	A	02-07-1968	NONE	
US 3525643	A	25-08-1970	NONE	
US 5432023	A	11-07-1995	JP 6188008 A US 5364711 A	08-07-1994 15-11-1994

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/DE 02/01426

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 H01M8/08 H01M8/04 H01M8/22

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	GB 1 258 153 A (-) 22. Dezember 1971 (1971-12-22)	1-5, 7, 8
Y	das ganze Dokument	6, 9, 10
X	US 3 843 410 A (SPAHRBIER D) 22. Oktober 1974 (1974-10-22)	1-3
Y	Spalte 1, Zeile 68 - Spalte 4, Zeile 55; Abbildung 1	10, 11
A	GB 1 195 633 A (-) 17. Juni 1970 (1970-06-17) Beispiele 2-5	1-11
Y	US 3 364 071 A (KORDESCH KARL V) 16. Januar 1968 (1968-01-16) Spalte 3, Zeile 39 - Zeile 52	6
	-/-	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*G\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

29. Juli 2003

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

06/08/2003

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Hintermaier, F

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 02/01426

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Beitr. Anspruch Nr.
Y	US 3 391 028 A (VOSE RICHARD S) 2. Juli 1968 (1968-07-02) Spalte 2, Zeile 27 - Zeile 48; Tabelle 3 ----	6
Y	US 3 525 643 A (RYHINER GUENTHER ET AL) 25. August 1970 (1970-08-25) Spalte 6, Zeile 66 - Zeile 68 ----	6
Y	US 5 432 023 A (HONGU AKINORI ET AL) 11. Juli 1995 (1995-07-11) Spalte 1, Zeile 9 - Spalte 2, Zeile 46 Spalte 8, Zeile 32 - Spalte 10, Zeile 36 Spalte 26, Zeile 20 - Spalte 29, Zeile 22 ----	9-11
Y	CACCIOLA G ET AL: "Technology up date and new strategies on fuel cells" JOURNAL OF POWER SOURCES, ELSEVIER SEQUOIA S.A. LAUSANNE; CH, Bd. 100, Nr. 1-2, 30. November 2001 (2001-11-30), Seiten 67-79, XP004322175 ISSN: 0378-7753 Seite 72 -Seite 73 -----	9-11

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationaler Aktenzeichen

PCT/DE 02/01426

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
GB 1258153	A	22-12-1971	DE 1771446 A1 FR 2009327 A5 JP 48027102 B	10-02-1972 30-01-1970 18-08-1973
US 3843410	A	22-10-1974	KEINE	
GB 1195633	A	17-06-1970	AT 276517 B BE 710841 A CH 479956 A DE 1671970 A1 FR 1580857 A NL 6802164 A SE 332243 B US 3576732 A	25-11-1969 16-08-1968 15-10-1969 21-10-1971 12-09-1969 19-08-1968 01-02-1971 27-04-1971
US 3364071	A	16-01-1968	AT 259650 B BE 646168 A CH 425919 A FR 1395108 A GB 1056294 A NL 6403735 A	25-01-1968 31-07-1964 15-12-1966 09-04-1965 25-01-1967 12-10-1964
US 3391028	A	02-07-1968	KEINE	
US 3525643	A	25-08-1970	KEINE	
US 5432023	A	11-07-1995	JP 6188008 A US 5364711 A	08-07-1994 15-11-1994

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINE(S) OR MARK(S) ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**